

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-305416

(43)Date of publication of application : 17.11.1998

(51)Int.Cl.

B28C 3/00  
B28B 3/20  
C04B 33/02  
C04B 35/632  
C08K 5/053  
C08L 1/00  
C09J101/28

(21)Application number : 09-119267

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

(22)Date of filing : 09.05.1997

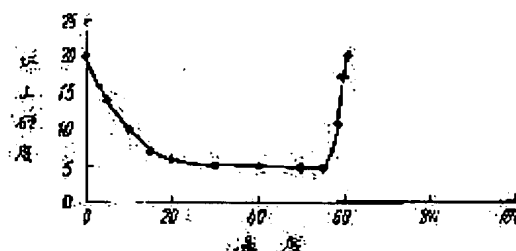
(72)Inventor : TSUDA YASUO  
INAKA TAKASHI

## (54) METHOD FOR MOLDING NON-PLASTIC MATERIAL

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a molding in which a binder is uniformly dispersed.**SOLUTION:** The method for molding a non-plastic material is equipped with a first step to obtain a body by mixing at least, a water-soluble binder made up of a cellulose derivative, a non-plastic raw material, water and as plasticizer and a second step to mold the body to the desired shape.

Further, in the first and the second step, the temperature of the body is set so that it is higher than a temperature at which the water-soluble binder is uniformly dispersed and is not higher than a temperature at which the water-soluble binder is gelled.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 26.02.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 16.03.2004

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-305416

(43) 公開日 平成10年(1998)11月17日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	F I	
B 2 8 C 3/00		B 2 8 C 3/00	
B 2 8 B 3/20		B 2 8 B 3/20	K
C 0 4 B 33/02		C 0 4 B 33/02	
35/632		C 0 8 K 5/053	
C 0 8 K 5/053		C 0 8 L 1/00	

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 4 頁) 最終頁に続く

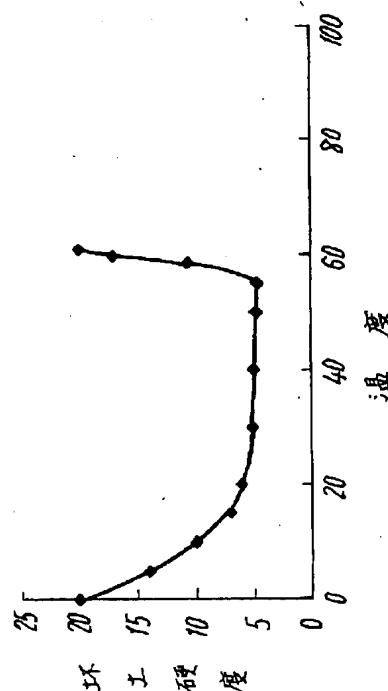
(21) 出願番号	特願平9-119267	(71) 出願人	000005821 松下電器産業株式会社 大阪府門真市大字門真1006番地
(22) 出願日	平成9年(1997)5月9日	(72) 発明者	津田 泰男 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器 産業株式会社内
		(72) 発明者	田▲含▼ 隆 大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器 産業株式会社内
		(74) 代理人	弁理士 滝本 智之 (外1名)

## (54) 【発明の名称】 非可塑性材料の成形方法

## (57) 【要約】

【課題】 バインダーが均一に分散した成形体を提供することを目的とする。

【解決手段】 少なくともセルロース誘導体よりなる水溶性バインダーと、非可塑性原料と、水と、可塑剤とを混合し坯土を得る第1の工程と、次にこの坯土を所望の形状に成形する第2の工程とを備え、前記第1の工程及び前記第2の工程において、前記坯土の温度が前記水溶性バインダーが均一に分散する温度以上、前記水溶性バインダーのゲル化温度未満となるようにすることを特徴とする非可塑性材料の成形方法。



**【特許請求の範囲】**

**【請求項 1】** 少なくともセルロース誘導体よりなる水溶性バインダーと、非可塑性原料と、水と、可塑剤とを混合し坯土を得る第 1 の工程と、次にこの坯土を所望の形状に成形する第 2 の工程とを備え、前記第 1 の工程及び前記第 2 の工程において、前記坯土の温度が前記水溶性バインダーが均一に分散する温度以上、前記水溶性バインダーのゲル化温度未満となるようにすることを特徴とする非可塑性材料の成形方法。

**【請求項 2】** 水溶性バインダーが均一に分散する温度は、10℃以上であることを特徴とする請求項 1 に記載の非可塑性材料の成形方法。

**【請求項 3】** 可塑剤は、エチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、グリセリン並びにこれらグリコール化合物の誘導体のうち少なくとも一種である請求項 1 に記載の非可塑性材料の成形方法。

**【請求項 4】** 第 2 の工程において、坯土の成形方法はスクリュウ式押出成形、ピストン式押出成形、ロール成形のうちの一つもしくはこれらの二種以上を組み合わせたものである請求項 1 に記載の非可塑性材料の成形方法。

**【請求項 5】** セルロース誘導体は、メチルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ヒドロキシエチルメチルセルロースなどの水溶性セルロース化合物のうちから選ばれた少なくとも一種以上である請求項 1 に記載の非可塑性材料の成形方法。

**【発明の詳細な説明】****【0001】**

**【発明の属する技術分野】** 本発明は、例えば圧電セラミック部品などの電子部品に用いる坯土（例えばセラミック粉体、水、有機バインダー、可塑剤などの添加物より成る押出成形用可塑性）などの非可塑性材料の成形方法に関するものである。

**【0002】**

**【従来の技術】** 従来バインダーと、セラミック粉体と、水と、可塑剤とを混合して坯土を押出成形により円筒形状、円柱形状や、シート形状（板状形状）に成形していた。

**【0003】** セラミック粉体などそれ自身が可塑性を持たない原料を押出成形するためには、流動性を与えるためのバインダーが不可欠であり、このバインダーとしては、メチルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロースなどのセルロース誘導体が広く用いられている。セルロース誘導体は、低温ほど水への溶解性が高いという性質を持っているため、セラミック原料に混合する場合及び成形する場合低温で行われていた。

**【0004】**

**【発明が解決しようとする課題】** しかし上記方法によると、低温になるほど坯土の粘性が増加するため、セルロ

ース誘導体を均一に分散させることが困難となり、混練が十分行えずセルロース誘導体が十分分散されず局所的に固まりとなって残る。そしてこのような固まりは成形体を焼成した後のセラミック中に大きな欠陥となって残る。特にセラミック電子部品などの場合、このような欠陥はセラミック強度の低下や電気特性の低下や、場合によっては経時的な劣化につながるという問題点を有していた。

**【0005】** そこで本発明は、バインダーが均一に分散した成形体を提供することを目的とするものである。

**【0006】**

**【課題を解決するための手段】** この目的を達成するために、本発明の非可塑性材料の成形方法は、少なくともセルロース誘導体よりなる水溶性バインダーと、非可塑性原料と、水と、可塑剤とを混合して坯土を得る第 1 の工程と、次にこの坯土を所望の形状に成形する第 2 の工程とを備え、前記第 1 の工程及び前記第 2 の工程において、前記坯土の温度が前記水溶性バインダーが均一に分散する温度以上、前記水溶性バインダーのゲル化温度未満となるようにすることを特徴とするものであり、坯土の粘性増加を抑制し、混練効果を向上させることにより上記目的を達成することができる。

**【0007】**

**【発明の実施の形態】** 本発明の請求項 1 に記載の発明は、少なくともセルロース誘導体よりなる水溶性バインダーと、非可塑性原料と、水と、可塑剤とを混合して坯土を得る第 1 の工程と、次にこの坯土を所望の形状に成形する第 2 の工程とを備え、前記第 1 の工程及び前記第 2 の工程において、前記坯土の温度が前記水溶性バインダーが均一に分散する温度以上、前記水溶性バインダーのゲル化温度未満となるようにすることを特徴とする非可塑性材料の成形方法であり、水溶性バインダーが均一に分散した成形体を得ることができる。

**【0008】** 請求項 2 に記載の発明は、水溶性バインダーが均一に分散する温度を 10℃以上とすることを特徴とする請求項 1 に記載の非可塑性材料の成形方法であり、水溶性バインダーが均一に分散した成形体を得ることができる。

**【0009】** 請求項 3 に記載の発明は、可塑剤としてエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、グリセリン並びにこれらグリコール化合物の誘導体のうち少なくとも一種である請求項 1 に記載の非可塑性材料の成形方法であり、坯土の流動性を良くし、摩擦熱による坯土の温度上昇を防ぐとともに、適度の柔軟性を有し、加工が容易な成形体を得ることができる。

**【0010】** 請求項 4 に記載の発明は、第 2 の工程において、成形方法としてスクリュウ式押出成形、ピストン式押出成形、ロール成形のうちの一つもしくはこれらの二種以上を組み合わせたものを用いる請求項 1 に記載の

非可塑性材料の成形方法であり、水溶性バインダーが均一に分散した成形体を得ることができる。

【0011】請求項5に記載の発明は、セルロース誘導体としてメチルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ヒドロキシエチルメチルセルロースなどの水溶性セルロース化合物のうちから選ばれた少なくとも一種以上である請求項1に記載の非可塑性材料の成形方法であり、坏土の流動性を良くし、強度の向上した成形体を得ることができる。

【0012】以下本発明の実施の形態について図面を参照しながら説明する。

(実施の形態1) 図1は本実施の形態における坏土の温度と硬度の関係を示す特性図である。

【0013】まず、可塑性を有しない圧電セラミック材料粉体100重量部に対して、水溶性バインダーとしてヒドロキシプロピルメチルセルロース10重量部、可塑剤としてグリセリン5重量部、水14重量部を加えて混合して坏土を得る。

【0014】次にこの坏土を温度5℃の冷蔵庫で12時間保管(熟成)した後、真空土練機により坏土の温度が15℃～20℃の範囲内になるように設備を冷却しながら混合(混練)を行った。

【0015】次いでこの坏土をスクリュタイプ真空押出成形機で、坏土の温度が15℃～20℃の範囲内になるように設備を冷却しながら、幅100mm、厚み500μmのシート状に成形した。真空混練機並びに真空押出成形機の冷却は、設備のバレル並びにスクリュ内部に水温8℃の冷却水を通すことにより行った。

【0016】このようにして成形したシート状の成形体を所定の形状に打ち抜き、電気炉でバインダーを除去した後、焼成してセラミック薄板を得た。次にこのセラミック薄板を厚み300μmに研磨し、幅7mm、長さ20mmの矩形状に加工して強度測定用の試料とし、三点曲げ法による強度試験を行った。

【0017】図1に坏土の温度と硬度の関係を示す。坏

	未溶解ヒドロキシ (30ミクロン以上)	素子中の欠陥 (30ミクロン以上)	3点曲げ強度	真空土練機電流
実施の形態1	0	0	235MPa	3 アンペア
実施の形態2	0	0	225MPa	2.5 アンペア
比較例1	5個/mm	4個/mm	170MPa	7 アンペア
比較例2	(成形できず)	—	—	13 アンペア

【0026】また、焼成、加工した試料について、三点曲げ法で強度試験を行った結果をあわせて(表1)に示す。

【0027】さらに、上記の各実施の形態及び比較例において、設備にかかる負荷の目安として真空土練機のモーターの電流値を比較した場合、(実施の形態1)では3アンペア、(実施の形態2)の場合には2.5アンペアであったが、(比較例1)の場合には7アンペアと著しく増大した。(比較例2)では設備の定格値である10アンペアを超え、また坏土が出て来なくなったため、

土の硬度は日本碍子製の粘土硬度計により評価した。

【0018】図1より、坏土の温度が10℃未満では粘性の増加により坏土硬度が急激に増加しているのが判る。

【0019】また、図1の55℃以上ではバインダーであるセルロース誘導体がゲル化し、坏土硬度は急激に増加する。

【0020】従って混練及び成形の際には、坏土の温度が水溶性バインダーであるセルロース誘導体が均一に分散する10℃以上、セルロースのゲル化温度未満になるように制御することが好ましい。

【0021】(実施の形態2) 坏土の温度を20℃～30℃にコントロールする以外は、(実施の形態1)と同様の工程で、同形状のシート状成形体を作成し、同様に焼成、加工して(実施の形態1)と同形状の試料を作成し、三点曲げ強度試験を行った。

【0022】(比較例1) 比較例1として、坏土の温度を2℃～7℃にコントロールする以外は、(実施の形態1)と同様に混練、成形を行い、成形体を作成し、(実施の形態1)と同様の方法で三点曲げ試験の試料を作成し、強度試験を行った。

【0023】(比較例2) 比較例2として、坏土の温度がヒドロキシプロピルメチルセルロースのゲル化温度(約55℃)近辺となるように設備に温水を流して混練、成形を行った場合には、ヒドロキシプロピルメチルセルロースのゲル化により坏土硬度が急激に上昇、また摩擦熱により著しく温度が上昇し、坏土中の水分が蒸発したこともあって、混練、成形ができず中断した。

【0024】以上の(実施の形態1)、(実施の形態2)及び(比較例1)の成形体について、未溶解のヒドロキシプロピルメチルセルロースを、メチレンブルーのエタノール溶液で染色し、顕微鏡で観察した。その結果を(表1)に示す。

【0025】

【表1】

実験を中断した。

【0028】(表1)から明らかなように、本発明により坏土の混練並びに押出成形を10℃以上、セルロース誘導体のゲル化温度未満で作成したシート状成形体では、セルロース誘導体の分散が十分行われ、未溶解のセルロース誘導体が見られない。

【0029】このため、この成形体を焼成したセラミック圧電素子についても、内部に30μm以上の大きな気孔のような欠陥は認められず、強度も従来法で作成された比較試料(比較例1)、(比較例2)に比べて向上し

ている。

【0030】さらに、設備にかかる負荷を著しく低減することが出来るため、セラミック材料の成形において大きな効果をもたらすものである。

【0031】なお、(実施の形態1)、(実施の形態2)においては、非可塑性材料として圧電セラミック材料粉体、水溶性バインダーとしてヒドロキシプロピルメチルセルロース、可塑剤としてグリセリンを用いて真空土練機により坏土を作成し、成形をスクリータイプの真空押出成形機を用いて行ったが以下のようにしても同様の効果が得られるものである。

【0032】(1) 非可塑性材料として、アルミナ、フェライト材料、セラミック材料なども用いる。

【0033】(2) 水溶性バインダーとしてヒドロキシプロピルメチルセルロースに変えて、メチルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ヒドロキシエチルメチルセルロースなどの水溶性セルロース化合物の内の一種類あるいはこれらを二種類以上組合せたものを用いる。

【0034】(3) 可塑剤としてはグリセリンに変えて、エチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコールなどのグリコール化合物の誘導体のうち少なくとも一種類あるいはこれらを二種類以上組合せたものを用いる。

【0035】(4) 混合(混練)は三本ロールミルを用いて行う。

(5) 成形はスクリー式の押出成形機だけでなく、ピストン式の押出成形機やロール成形機を用いる。また成形体の形状もシート状に限らず、円筒形状、円柱形状にしてもよい。

【0036】また混練並びに押出成形の時の坏土温度は、30℃を超えた場合には、摩擦熱の増大により加速的に温度が上昇し、適温に制御するのが難しくなるため、坏土の温度は10℃以上30℃以下とするのがより好ましい。

【0037】さらに押出成形に最適な坏土の硬度は設備にもよるが、日本碍子製の粘土硬度計で測った硬度では、おおむね2~13程度が好ましい。

【0038】さらにまた(実施の形態1)及び(実施の形態2)において作成した成形体を用いることにより、焼成後も強度が高く、内部構造欠陥のないセラミック圧電素子を得ることができる。

【0039】またセラミック圧電素子だけでなく、コンデンサやバリスタ、サーミスタなどの強度及び内部構造欠陥のないことを要求されるセラミック電子部品についても同様の効果がある。

【0040】セラミック電子部品だけでなく、フェライトを用いる電子部品、アルミナ基板、アルミナの抵抗棒の作成など本発明は、広範囲に適用できるものである。

【0041】

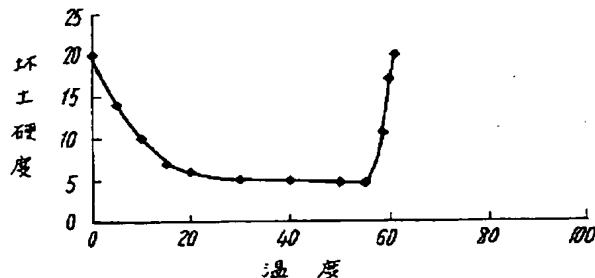
【発明の効果】以上本発明によると、水溶性バインダーが均一に分散した成形体を得ることができる。

【0042】またこの成形体を焼成することにより、強度が高く、内部構造欠陥のない焼結体を得ることができ、この焼結体を用いて形成した電子部品は電気特性の低下や、経時的な劣化のないものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施の形態における坏土の温度と硬度の関係を示す特性図

【図1】



フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>6</sup>

C 08 L 1/00

C 09 J 101/28

識別記号

F I

C 09 J 101/28

C 04 B 35/00

108